

非線形光学装置に関する基礎的研究

著者	伊藤 弘昌
号	341
発行年	1971
URL	http://hdl.handle.net/10097/9077

氏 名 (本 籍)	伊 藤 弘 昌 (千 葉 県)
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	工 博 第 3 4 1 号
学位授与年月日	昭和 4 7 年 3 月 2 4 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 1 項該当
研究科専門課程	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 電子工学専攻
学 位 論 文 題 目	非線形光学装置に関する基礎的研究

(主 査)

論文審査委員	教授 稲場 文男	教授 虫明 康人
	教授 柴田 幸男	教授 小野 昭一

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 総 論

レーザー光の出現によりコヒーレントな電磁波は光波領域まで拡張されるようになった。しかしながら，レーザー発振が物質の固有振動に相当する準位間の遷移により生ずるという動作原理から，発振波長はそれぞれの物質に固有の値をもっている。このためレーザー遷移以外の波長でコヒーレントな光波を得る研究が，レーザー発振の進展とともに強く望まれるようになってきた。これは物質を構成している個々の原子や分子，電子などが究極的に具えている非線形光学効果を利用して，レーザー光を別の波長のコヒーレント光に変換しようとするものである。

非線形光学の研究は，レーザーの発明された翌年の 1 9 6 1 年に行なわれたルビー・レーザー光の第 2 高調波発生に始まり，以来多くの物質および種々の波長において高調波発生，パラメトリック増

幅，発振等の研究が理論および実験の両面で成されてきた。

本研究では，量子エレクトロニクス分野において本質的な働きをする各種非線形光学装置に着目し，先ずその基礎となる各種非線形現象の解析と，非線形光学材料の非線形分極に対する統一的な表式を導く。さらにこの結果にもとづき，各種非線形光学装置の動作設計を行ない，基本的動作特性を実験的に把握すると共に，非線形光学装置の実用のための基礎的資料を得ることを主な目的としている。

第2章 非線形光学効果の基本的考察

非線形光学効果の基本的な特性をまとめ，その分類を行なうとともに，各種非線形光学装置との関係を明確にする。次に代表的な3光波の関与する2次非線形効果を結合モード方程式により一般的に考察し，第2高調波発生（SHGと略す），3光子パラメトリック増幅，発振等の現象の特性を概説する。

第3章 結晶中に誘起される非線形分極の解析的表示

非線形相互作用は一般に，次式に示すエネルギーと運動量の保存則が満たされる方向で最も有効に生ずる。

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \quad (1)$$

$$\kappa_3 = \kappa_1 + \kappa_2 \quad (2)$$

ここで ω ， κ はそれぞれ角周波数および波数ベクトルであり，添字1，2，3は相互作用する各光波に対応する。(2)式は位相整合条件とも呼ばれ，非線形相互作用の動作条件を決定する重要な関係式であり，結晶の複屈折性および分散特性により，collinearな条件の下で満足することができる。この位相整合状態で誘起される2次非線形分極の大きさは，結晶の属するclassと，相互作用する光波の偏波方向，および結晶軸に対する伝播方向によって決定される。

本章では，2次非線形性を有する，中心対称を欠く1軸性および2軸性の全classの結晶について，伝播方向に依存して誘起される2次非線形分極の一般的表式を導出し，これより非線形光学結晶を実際に用いる上で極めて重要な，実効的2次非線形分極率 d_{eff} を求めた。特に今まで一般的には明らかにされていなかった2軸性結晶に対するこれらの表示から最適動作条件の決定等，重要な多くの情報を導くことができた。

第4章 非線形光学結晶における第2高調波発生の位相整合条件と動作設計

本研究において具体的な検討を行なった結晶は，1軸性の LiNbO_3 ， LiIO_3 ， Ag_3AsS_3 ，およ

び2軸性の HIO_3 , $\text{LiCOOH} \cdot \text{H}_2\text{O}$ の5種類である。本章では、これら結晶の屈折率の分散を与えるSellmeier方程式を屈折率の測定結果より決定し、これよりSHGの位相整合条件を検討した。特にNd:YAGレーザー光(波長 $1.064\mu\text{m}$)を基本波としたSHGについて詳しく考察し、本章の動作実験の基本資料とした。この際前章で求めた実効的2次非線形分極率の具体的な考察から、最適動作条件を検討し、SHGの動作設計法を明らかにした。

第5章 Nd:YAGレーザーによる第2高調波発生の実験

Nd:YAGレーザーは、室温で連続発振が可能な固体レーザーであり、一方Q-スイッチ法により尖頭出力の大きな高速繰り返しパルス発振が得られ、多くのレーザー発振材料の中でも高効率性やその出力、さらに発振波長、装置の実用性等で最も注目されているものの一つである。本研究にあたり、連続およびQ-スイッチ動作の2種類のNd:YAGレーザー装置を試作し、各種動作実験に用いた。

これらのレーザーを用いたSHGの実験を、 LiNbO_3 , LiIO_3 , $\text{LiCOOH} \cdot \text{H}_2\text{O}$ の各結晶について定量的に行ない、その結果第4章および第5章の理論および動作設計の結果といずれも極めて良い一致をみた。代表的な測定結果をFig.1およびFig.2に示す。Fig.1は LiNbO_3 のSHGに対する温度同調特性を示すもので、同調温度や同調温度巾、profile等の詳細な検討から、屈折率の温度係数や、結晶の品質に対する具体的な情報が得られることを明らかにした。Fig.2は HIO_3 におけるSHG出力の位相整合角度に対する依存性より、実効的2次非線形係数を検討した一

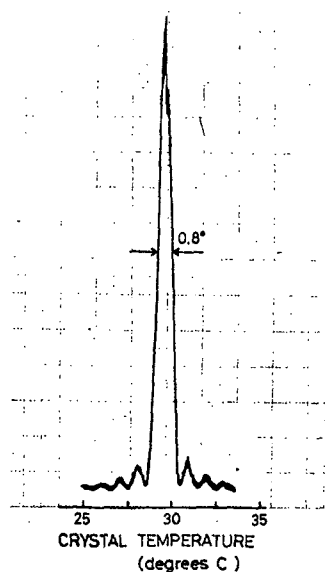


Fig. 1

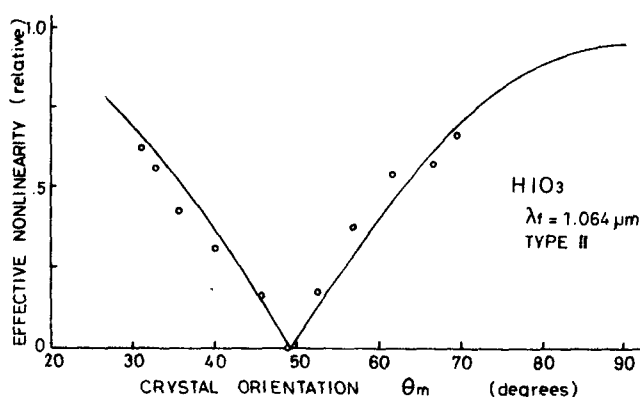


Fig. 2

例であり，実線の理論曲線と実験値との良好な一致より第3章の理論的解析の妥当性を実験的に証明した。

第6章 3光子パラメトリック効果の位相整合条件と動作設計

非線形光学現象の中でもパラメトリック相互作用は本質的に tunable な過程であり，現象を起こさせる周波数を外部条件によって任意に制御することができる。位相整合条件はパラメトリック過程においてこの周波数関係を決定するもので，広範囲な波長域にわたる同調には，角度変化によるものが多く用いられるが，結晶によっては温度による広範囲な同調も可能である。

各種レーザー光およびその高調波をポンピングとした位相整合条件を，SHGの場合と同様の前述の5種類の結晶について求めた。同時に第3章で行なった1軸性および2軸性結晶の実効的2次非線形係数の考察より，パラメトリック効果に対する各種結晶の最適動作条件を明確にした。

第7章 3光子パラメトリック発光の実験的検討

パラメトリック発光(OPF)と呼ばれる現象は光の非線形散乱の一種であり，非線形物質中で信号光およびアイドラー光の零点エネルギーがポンピング光よりパラメトリック変換されて発生する現象である。従って物質中で正味の増幅利得を伴う光混合作用が実現しなくとも，このような発光を観測することができる。

この発光の測定により，パラメトリック過程の位相整合条件を実験的に検討することが可能であり，さらに，アイドラー波長での屈折率，特に赤外領域などの吸収の可成り生じつつある領域での屈折率や，物質の非線形感受率の大きさに対する情報が得られる等の利点を具えている。

本章では，パラメトリック発振器の設計，試作の基礎的資料を得ると共に，OPFにより得られる情報が物理的にも有意義であることに着目して行なった実験と検討の結果を述べる。実験はLiNbO₃およびLiCOOH・H₂O結晶について，Nd:YAGレーザーの第2高調波(5320 Å)とArレーザー(3371 Å)をそれぞれポンピングに用いて同調特性の測定を行なった。HIO₃のOPFに関しては，DobrzhanskiらによりArレーザーを用いた詳しい同調特性の測定が報告されている。これらの結果より，2軸性結晶のLiCOOH・H₂OおよびHIO₃のアイドラー波長での屈折率を求めた結果がFig.3およびFig.4である。いずれも○印がOPFデータより求めた屈折率であり，●は通常の光学的方法による測定結果で，OPFが赤外域での屈折率の決定に極めて有効であることを明らかにした。

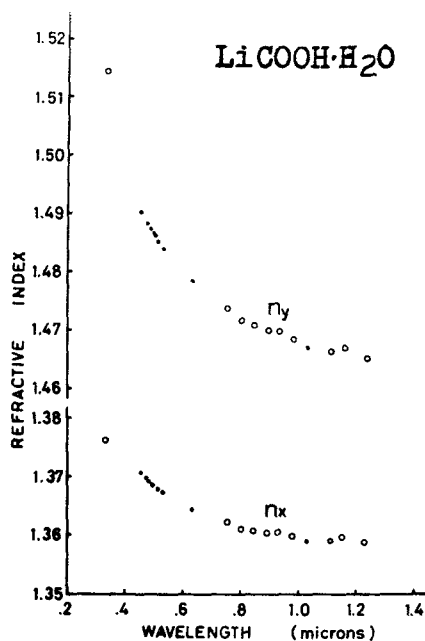


Fig. 3

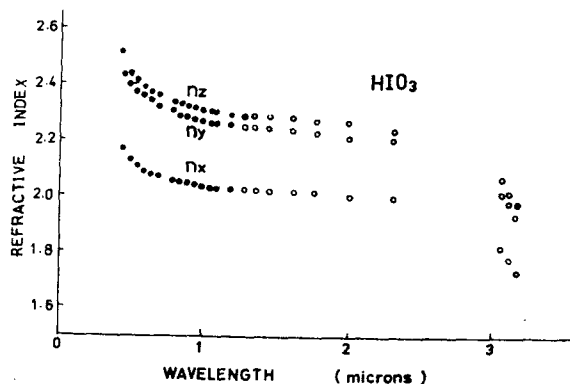


Fig. 4

第 8 章 4 光子パラメトリック発光過程の理論的解析および位相整合条件

本章および次章においては、3 次の非線形光学効果による 4 光子 O P F の理論的および実験的検討を行なう。4 光子 O P F は 3 光子の場合と同様に、物質中で正味の増幅利得を伴う光パラメトリック混合作用が実現しなくとも観測されるもので、Kleinman による 3 光子 O P F の半古典的理論を 4 光子の場合に発展させ、その解析を行なった。この結果、4 光子 O P F は S H G の場合と同様の集光効果を有し、この点がレーザー光の集光効果に関係しない 3 光子 O P F との顕著な差異であることが理論的に明らかになった。

次にルビー・レーザー光をポンピングとした位相整合条件の検討を、K D P , A D P , T i O ₂ , C d S の 4 種の結晶について行ない、ほぼ可視全域にわたり周波数同調の取れることを明らかにし、次章の実験に対する有用な指針を与えた。

第 9 章 4 光子パラメトリック発光の実験的検討

前章の考察にもとづき、K D P , A D P および T i O ₂ 結晶による 4 光子 O P F の測定を行ない、同調特性、およびポンピング入力と信号出力の定量的な測定から 3 次の非線形感受率の値を検討した。Table 1 にはこの結果とともに光混合や第 3 高調波発生により得られた代表的な媒質の

3 次の非線形感受率の値の比較を示す。TiO₂ は $5 \times 10^{-12} \text{ cm}^2 \text{ erg}^{-1}$ と KDP, ADP 等に比し 2 桁程度大きく, また CdS や CaCO₃ とほぼ同程度の大きな非線形性を有することを初めて明らかにした。

OPF による 3 次の非線形感受率の決定は, 今後多くの非線形光学結晶について有用な手段になると考えられる。また, この結果から TiO₂ や CaCO₃, CdS などの結晶は, 4 光子パラメトリック過程による発振を実現するために有望なものと判断され, 今後その応用が期待される。

Table 1 Experimental values of $\chi^{(3)}$

material	$\chi^{(3)} \text{ (cm}^2 \text{ erg}^{-1} \text{)}$
KDP	2×10^{-14} (this work)
ADP	1×10^{-14} (this work) 2×10^{-14} (C.C.Wang & E.L.Baardsen (1969))
TiO ₂	5×10^{-12} (this work)
CdS	5×10^{-12} (P.D.Maker & R.W.Terhume (1965))
H ₂ O	0.3×10^{-15} (P.D.Maker & R.W.Terhume (1965))
CaCO ₃	7.2×10^{-12} (J.G.Meadors et.al.(1969))
BSC	4×10^{-14} (P.D.Maker & R.W.Terhume (1965))
glass	0.8×10^{-14} (C.C.Wang & E.L.Baardsen (1969))

第 10 章 パラメトリック発振装置の設計と検討

第 6 章のパラメトリック効果に関する基礎的動作特性の考察，および第 7 章の 3 光子 O P F の測定結果にもとづき，本章では Nd:YAG レーザーの基本波 ($1.064\ \mu\text{m}$) およびその第 2 高調波 ($0.532\ \mu\text{m}$) をポンピングとする， LiNbO_3 結晶を用いた赤外域におけるパラメトリック発振装置の設計および考察を行ない実用上有用な結果を得た。

第 11 章 結 論

第 1 章から第 10 章までの研究結果を総括し，考察を加えて結論とした。

光波領域における非線形効果にもとづく非線形光学装置の研究は，非線形光学材料の研究，開発と密接な関係にあり，さらに良質で非線形性の大きな材料の実用開発が望まれるとともに，個々の材料の特性を十分に活かした動作設計が必要となるわけで，本論文ではその方法を具体的かつ系統的に示した。

謝 辞

終りに，本研究に終始御指導，御鞭撻を賜った稲場文男教授，有益なる御教示を賜った虫明康人教授，柴田幸男教授，小野昭一教授に深く感謝する次第である。

審 査 結 果 の 要 旨

レーザーが実現してから10余年を経過し、紫外域から遠赤外域に至る数多くの発振波長が得られている。しかし、レーザー発振はそれぞれの物質のエネルギー準位構造に固有なものであるため、その波長を自由に連続的に変化させることはできない。この点の解決は、レーザーを中心とする量子エレクトロニクスに課せられた、最も重要な課題の一つといえる。

著者はこのような観点から、物質の非線形光学効果を利用して、レーザー光をさまざまな波長域のコヒーレント光に変換する問題に取り組む、基本的な動作機構を解明すると共に、新しい光波エレクトロニクス装置の開発、設計という立場から研究を進めて来た。本論文は、これらの研究成果をとりまとめたもので、全編11章および付録とからなっている。

第1章は総論である。第2章では、2次の非線形光学効果の基本的特性と、それにもとづく非線形光学装置の分類と役割を明らかにしている。

第3章では、結晶中にレーザー光によって誘起される2次の非線形分極を理論的に解析し、一般的な表示にもとづいて、1軸および2軸結晶の実効的非線形係数の表現を得ている。これらは非線形光学装置の最適動作の設計上、特に有用な成果である。

第4章では、各種の非線形光学結晶について、具体的に第2高調波発生のための位相整合条件を検討している。そのため、各結晶について屈折率の Sellmeier 方程式の係数を実験的に求め、さらに前章で導いた実効的非線形係数の値から最適動作条件を明らかにしている。

第5章は、前章の理論的結果を実験によってたしかめたもので、著者の設計試作したNd:YAGレーザーを駆使して、数種の1軸および2軸結晶からの第2高調波を測定している。その結果は、動作設計の妥当性を実験に用いたすべての結晶について証明しており、貴重な知見である。

次の第6章から第9章までは、非線形光学装置の一つとして重要な、連続的に発振波長を同調できるパラメトリック発振装置に用いられる結晶の、基本的な非線形性に関する一連の研究を記述したものである。

この中、第6章と第7章は2次の非線形性にもとづく3光子過程、また第8章と第9章は3次の非線形性による4光子過程を対象としている。両者ともはじめにその過程を量子論的に解析し、さらに各種の結晶についてのパラメトリックな位相整合条件を具体的に検討している。次に、実際にNd:YAGレーザーの第2高調波やルビー、N₂気体のレーザー光をポンピングに用いて、両者の過程にもとづく、結晶中の各光子間の位相整合条件を詳細に測定しており、3光子過程ではLiCOOH・H₂O結晶が、また4光子過程ではTiO₂結晶が実用上すぐれた材料であることをはじ

めて明らかにしている。

第 10 章は，以上の研究にもとづいて可視域および近赤外域で動作するパラメトリック発振装置の設計，試作を行なった結果をまとめたものである。

第 11 章は結論である。

以上要するに本論文は，従来系統的研究が少なく，装置としての設計方法が明らかにされていなかった非線形光学装置について，基礎的特性を物理的，工学的に解明し，それにもとづいて装置の動作設計の指針を与えて，有用な知見を加えたものであって，電子工学に寄与するところが少なくない。

よって，本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。